

# 钕玻璃微球荧光谱中共振结构的分析

吕宝龙 王育竹 黎永青 刘亚淑

(中国科学院上海光机所量子光学(联合)开放实验室, 上海 201800)

**提要** 本文在理论上模拟了钕玻璃微球在 810 nm 波长附近的共振光谱, 并通过与实验结果比较识别和分析了出现的模式。发现序数为 15、16 的模式在光谱中占主导地位。

**关键词** 微球腔, 尺寸参数, 腔内 QED 效应

## 1 引 言

现在人们已普遍承认, 对于放置在光学腔内的原子, 其自发辐射强度可以因腔而改变。自发辐射被增强还是被抑制取决于腔内原子是否与腔模共振<sup>[1]</sup>。这种效应又称为腔内量子电动力学(Cavity QED)效应。它的产生是由于腔内模式密度即单位体积和单位频率内的模式数可以高于自由真空模式密度。共振时 QED 增强因子可表示为<sup>[1]</sup>:

$$\eta = 3DQ\lambda^3/4\pi^2V_m$$

其中  $D$  是腔模简并度,  $Q$  为腔的品质因数,  $\lambda$  是辐射光的波长,  $V_m$  代表模体积。最近, 一种新型的光学腔颇为引人注目。它能导致很高的 QED 增强。这种腔实际上是尺寸在几十微米左右的透明介质微球。腔内光场依靠内表面的全反射获得反馈。腔模的频率以及腔内外的光场分布都可以利用 Lorenz-Mie 理论严格计算<sup>[2]</sup>。如果定义一个微球尺寸参数  $x = 2\pi a/\lambda$  ( $a$  为微球半径), 则共振模式位于确定的位置  $x_{n,l}$ , 其中模数  $n$  代表描述光场分布的球贝塞尔函数和球汉克尔函数的阶数。序数  $l$  表示腔内光场在径向分布的极大值数目。因为 TE 模和 TM 模都存在, 腔模一般记为 TE <sub>$n$</sub>  <sup>$l$</sup>  或 TM <sub>$n$</sub>  <sup>$l$</sup> 。Campillo 等人观察到<sup>[3]</sup>, 含有染料的液滴微球的荧光谱与通常的染料宽带谱不同, 出现了许多尖锐结构。这些结构就是自发辐射在相应波长处的 QED 增强造成的。我们也曾研究过固态的钕玻璃微球所表现的 QED 现象<sup>[4]</sup>。

本文不仅报道实验上观察钕玻璃微球在光学波段的 QED 效应, 而且通过理论模拟识别和分析了实验中出现的各个序数的模式结构。

## 2 实验结果

实验中所用的钕玻璃微球直径约 50  $\mu\text{m}$ , 含有 3% 的 Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>。整个实验装置与以前用过的

相同<sup>[4]</sup>。如图 1 所示,连续的氩离子 514.5 nm 激光经透镜  $L_1$  聚焦后直接激发放置在平板玻璃上的钕玻璃微球,聚焦光斑的直径约  $10\ \mu\text{m}$ 。激发位置由一个  $40\times$  的显微镜监视。为清晰起见,从显微镜出来的影像投射到距显微镜 2 m 远的白纸屏幕上。钕玻璃球发出的荧光由透镜  $L_2$  收集到光栅扫描光谱仪的入射狭缝上。狭缝前的  $\text{HB}_9$  滤光片滤掉 514.5 nm 的弹性散射光。光谱仪的输出信号经光电倍增管放大后由  $X-Y$  记录仪记录或由计算机采集。放置微球的玻璃薄片固定在二维调节架上,所以微球与激光光束的相对位置可以精心调节以使激发光与微球腔之间有最佳的耦合。

图 2 是实验所用的微球经过  $40\times$  显微镜后投影到屏幕上的影像。用显微镜测得微球半径为  $a \approx 23\ \mu\text{m}$ 。之后,我们扫描了它在 805~830 nm 波长范围内的荧光谱。如图 3 (a) 所示,在宽带的背景谱上出现了一系列尖峰结构。理论上,具有同一个序数  $l$  的模式有一个固定的间距<sup>[5]</sup>,即

$$\Delta x = \tan^{-1}(m^2 - 1)^{1/2} / (m^2 - 1)^{1/2}$$

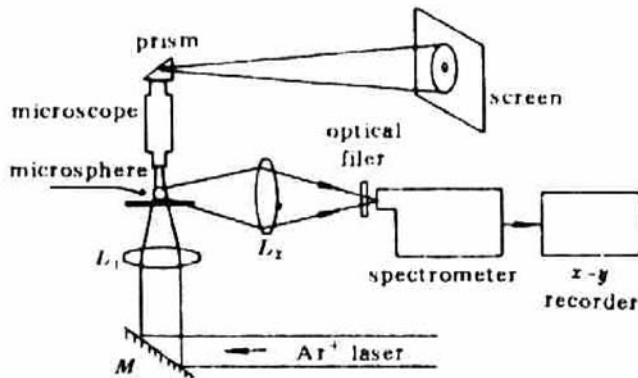


Fig. 1 Schematic of experiment arrangement

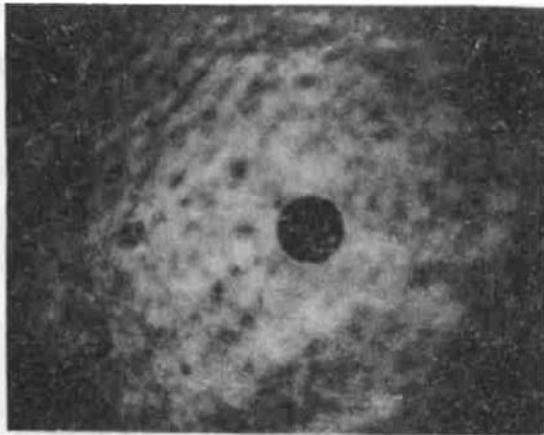


Fig. 2 A Nd-glass microsphere's projection image on screen

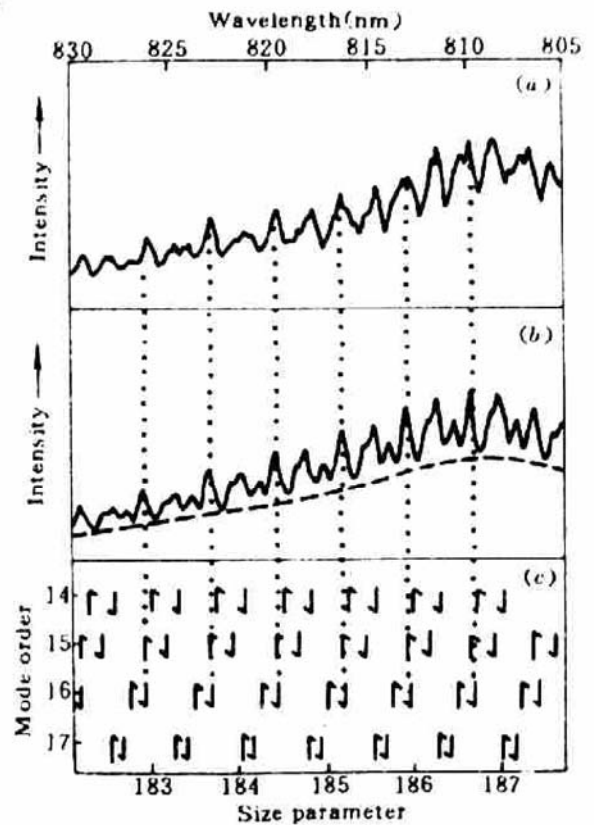


Fig. 3 (a) emission spectrum (805~830 nm) of a Nd-glass microsphere with a  $48.11\ \mu\text{m}$  diameter; (b) theoretically simulated fluorescence spectrum for the microsphere in the same wavelength range; dashed line indicates the continuous spectrum of normal bulk Nd glass; (c) marked locations of cavity modes of orders 14 to 17, up (down) arrows refer to TE (TM) modes

其中  $m$  是微球的折射率。对实验所用的材料和关心的光谱范围有  $m \approx 1.51665$ , 对应  $\Delta x = 0.7462$ 。光谱 (a) 中几个最典型的模式之间距为  $\Delta\lambda = 3.17 \pm 0.05\ \text{nm}$ , 利用关系式  $\Delta\lambda = \lambda^2 \Delta x / 2\pi a$  可算出微球半径  $a = \lambda^2 \Delta x / 2\pi \Delta\lambda = 24.6 \pm 0.75\ \mu\text{m}$ , 这个半径值比显微镜测得值精确得多, 把光谱 (a) 对应的尺寸参数范围限定在 182~194 内, 为下一步的模式识别提供了方便。

### 3 理论分析

钹玻璃微球的荧光信号由两部分构成。分立的尖峰结构产生于模体积内的激发钹离子。结构下面的背景谱则来自于模体积外的激发钹离子；这些钹离子的发光性质基本不受腔的影响。据此我们曾推出<sup>[6]</sup>，微球荧光谱中结构强度与背景强度的比例可表示成

$$r = 9Q_{\text{ext}}\zeta/x^2 \quad (1)$$

其中  $Q_{\text{ext}}$  为模式的向外耦合损耗对应的品质因数，即理想腔（不考虑内部损耗）的品质因数。 $\zeta$  是模式光场向外耦合系数，表示腔模光场耦合到腔外的比例。由关系式  $\zeta = 1/(1 + Q_{\text{ext}}/Q_{\text{ab}})$  确定。上式的  $Q_{\text{ab}}$  是内部吸收品质因数。如果微球材料的吸收系数为  $\alpha$ ，则  $Q_{\text{ab}}$  等于<sup>[7]</sup>  $2\pi m/\alpha\lambda$ 。忽略内部吸收则  $Q_{\text{ab}} = \infty$ ，此时  $\zeta = 1$  意味着腔模光场可全部耦合到腔外。钹玻璃材料在 805 ~ 830 nm 范围内的平均吸收系数  $\alpha \approx 0.5 \text{ cm}^{-1}$ ，那么  $Q_{\text{ab}} = 2 \times 10^5$ 。值得提及的是，(1) 式推导中并未考虑光谱仪分辨率的影响。当光谱中某个模式的线宽  $w$  小于光谱仪的分辨率  $\delta\lambda$  时，由于光谱仪在  $\delta\lambda$  范围内的积分作用，实际观测到的结构强度要比 (1) 式的估算值降低约  $\delta\lambda/w$  倍。因此，线宽窄于  $\delta\lambda$  的模式结构的强度应为

$$r = 9Q_{\text{ext}}\zeta p/x^2 \quad (2)$$

其中  $p = w/\delta\lambda$ 。观察 (2) 式，我们得知那些  $Q_{\text{ext}}$  很小的模式其强度也很弱。而如果  $Q_{\text{ext}}$  很高，线宽和  $p$  因此必然很小，而且向外耦合系数  $\zeta$  也很小。这两类模式都不可能在光谱中以足够的强度出现。实验中光谱仪的分辨率  $\delta\lambda \approx 0.5 \text{ nm}$ 。综合考虑以上各个因素的影响，可知图 3(a) 光谱中模式的  $Q_{\text{ext}}$  值在  $500 \sim 10^6$  之内。

以上的分析使我们有可能在理论上模拟实验结果。我们首先运用 Lorenz-Mie 理论计算出尺寸参数  $x$  在 182 ~ 194 之内且满足  $500 \leq Q_{\text{ext}} \leq 10^6$  的所有模式的位置和  $Q_{\text{ext}}$  值。计算方法是这样的：将米氏散射系数  $a_n, b_n$  写成方便的形式，例如  $a_n = 1/(1 - iK)$ ；其中

$$K = x^2 y_n^2(x) \left[ \frac{y_{n-1}(x)}{y_n(x)} - \frac{j_{n-1}(x)}{j_n(x)} \right] \left[ \frac{T_n - y_{n-1}(x)/y_n(x)}{T_n - j_{n-1}(x)/j_n(x)} \right]$$

这里的  $j_n(x)$  和  $y_n(x)$  是球谐函数。而  $T_n = [mx j_n(mx)]' / x j_n(mx) + n/x$ ， $a_n$  在  $K = 0$  时取极大值，对应的尺寸参数  $x$  就是 TE 模的位置。模式的全宽  $w$  两倍于斜率  $dx/dK$ ，所以模式的  $Q_{\text{ext}}$  值为  $Q_{\text{ext}} = x/w = 0.5 dx/dK$ 。TM 模式的位置和  $Q_{\text{ext}}$  可用同样的方法由  $b_n$  算出。接下来按 (1) 式或 (2) 式计算其相对强度  $r$ 。然后按下式计算谱形

$$S(x) = 1 + \sum_{q=1}^{q_0} \frac{r_q (w/2)^2}{(x - x_q)^2 + (w/2)^2}$$

这里的  $q_0$  代表有关模式的数目；整个式子表示，在强度为 1 的背景上且在每个模式相应的尺寸参数位置叠加一个峰高等于  $r$ 、线宽等于模式线宽的洛伦兹线型。当然，模式线宽小于光谱仪分辨率  $\delta\lambda$  时，以  $\delta\lambda$  取而代之。最后利用大块钹玻璃的荧光谱对整个轮廓进行调制就得到了模拟的微球荧光谱。观察图 3(a) 中各个典型模式的形状和强弱变化，并且与模拟光谱比较，很容易地确定出光谱 (a) 对应的尺寸参数范围为 182.1 ~ 187.75。据此推知，微球半径更精确的值为  $a = 24.06 \pm 0.05 \mu\text{m}$ ，如图 3(b)，(c) 所示，理论结果和实验曲线的模式对应关系也随之确定。图中朝上和朝下的箭头分别代表 TE 模和 TM 模。不难发现，象图中点线所标注的较强结构是由序数为 15 和 16 的模式构成的。图 4 绘出了与实验有关的模式的  $Q_{\text{ext}}$  值。参考图 4，我们知道这两个序数的模式具有量级在  $10^3$  和  $10^4$  的  $Q_{\text{ext}}$  值。内部吸收和光谱仪的分辨率对它们的强度几乎无影响，所以这些模式最宜出现。现在我们以其中的 TE<sub>15</sub> 模为例来估算 QED 增强的

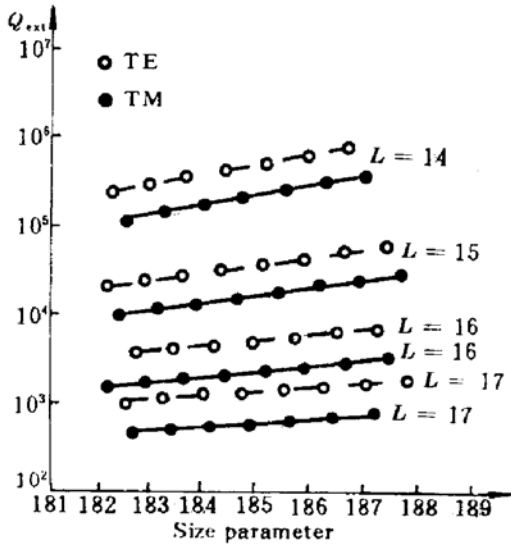


Fig. 4  $Q_{\text{ext}}$  values of the cavity modes relevant to the observed emission spectrum in Fig. 3 (a).  $L = 14 \sim 17$  represent the orders of these modes

幅度。它的品质因数  $Q_{\text{ext}} = 2.8 \times 10^4$ ,  $x = 183.67$ 。根据我们以前导出的公式<sup>[6]</sup>, 增强倍数为  $\eta = 9 \sqrt{2 m^2 Q_{\text{ext}} \zeta / x^{3/2}} \approx 320$ 。我们知道, QED 效应起因于腔内模式密度的变化; 而对宏观腔(F-P 腔)来说, 它的模体积比微球腔的模体积大得多, 模式简并度也很低, 所以它的模式密度比微球腔小得也多。这正是在宏观腔中难以观察 QED 效应的原因, 也充分体现了微球腔在 QED 效应研究上的优势。

图 3 中的理论曲线和实验曲线并非完全一致。首先, 模式位置的对准程度仍有 0.2 nm 左右的误差。其次, 模拟光谱中某些结构的强度与实验结果也不尽相同。钕玻璃的吸收系数随波长而变化, 我们为简化起见在计算  $Q_{\text{ab}}$  时采用了一个平均吸收系数, 这可能造成了较大的误差。尽管如此,

本文使用的这套拟合方法对微球荧光谱的分析仍然是简单有效的。

**致谢** 衷心感谢胡和方教授等为我们提供了钕玻璃微球。

### 参 考 文 献

- 1 P. Goy, J. M. Raimond *et al.*. *Phys. Rev. Lett.*, 1983, **50**: 1903~1906
- 2 P. R. Conwell, P. W. Barber, C. K. Rushforth. *J. Opt. Soc. Am. A*, 1984, **1**: 62~67
- 3 A. J. Campillo, J. D. Eversole, H-B. Lin. *Phys. Rev. Lett.*, 1991, **67**: 437~440
- 4 Y. Z. Wang, Y. Q. Li, B. L. Lu. Tenth International Conference on Laser spectroscopy XX, Paris, France, June, (1991), invited paper, 205~210, Edited by M. Ducloy, E. Giacobino, G. Camy, Published by World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd. Farrer Road, Singapore
- 5 Steven C. Hill, C. K. Rushforth, R. E. Benner *et al.*. *Appl. Opt.*, 1985, **24**: 2380~2390
- 6 B. L. Lu, Y. Z. Wang, Y. Q. Li *et al.*. 1992 International Conference on Lasers and Optoelectronics, 166~169, Beijing, China Published by SPIE-The International Society for Optical Engineering
- 7 P. Chylek, H-B. Lin, J. D. Eversole *et al.*. *Opt. Lett.*, 1991, **16**: 1723~1725

## Analysis of resonant structures in the spectrum of a Nd-glass microsphere

Lü Baolong Wang Yuzhu Li Yongqing Liu Yashu

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai 201800)

**Abstract** The resonant spectra around 810 nm wavelength of a Nd-glass microsphere was simulated theoretically. By the comparison between theoretical results and experimentally observed spectrum, the QED structures emerging in experiment was identified, which shows that the cavity modes of orders 15 and 16 dominate the spectrum.

**Key words** microspherical cavity, size parameter, cavity QED effect